

정수용 입상활성탄상의 세균

이동근 · 하종명 · 이재화*

신라대학교 공과대학 생명공학과

Received November 18, 2003 / Accepted January 7, 2004

Bacteria on Granular Activated Carbon for Tap Water Purifier. Dong-Geun Lee, Jong Myung Ha and Jae-Hwa Lee*. *Department of Bioscience and Biotechnology, College of Engineering, Silla University* – To investigate the bacterial growth on granular activated carbon (GAC) for the purification of tap water, fixed bed columns with GAC were installed and operated at an empty bed contact time (EBCT) of $1 \text{ min} \pm 0.08 \text{ min}$. There was no bacterial breakthrough in the spring. However, the bacterial concentrations of effluent (10^3 CFU/ml) were higher than that of the influent (10^2 CFU/ml) after 10 day operation in summer. More bacteria were enumerated near the entering point of the tap water, while the bacterial activities were similar throughout the columns. Different bacterial species were detected on coal- and plant-based GAC, although the dominant genus was the same as *Acinetobacter*.

Key words – water purifier, granular activated carbon (GAC), tap water, *Acinetobacter*

인구 증가와 문명 발달에 따라 상수원수의 오염 현상은 피할 수 없게 되었으며, 오염된 상수원수의 올바른 처리를 위하여 다양한 기법들이 도입되어 왔다[6]. VOC (Volatile Organic Carbon), SOC (Synthetic Organic Carbon) 등에 대한 흡착 성능이 우수한 활성탄이 수처리에 많이 이용되고 있으며[5], 오염 물질을 포함한 유기물의 분해로 활성탄 수명 연장 등의 효과가 있는 생물활성탄(Biological Activated Carbon, BAC)은 활성탄 상에서의 미생물들의 성장과 유지가 중요한 것으로 알려졌다.

한편 정수장에서 안전하게 생산한 수도물일지라도 관망의 노후화와 유기물 등의 영향으로 관망 수도꼭지에서는 미생물학적으로 불안정한 음용수가 될 가능성이 있으며, 대장균과 바이러스가 검출되는 보고도 있었다[2,7,12,14]. 이러한 현상에 대응한 대체식수로 생수와 약수를 이용하는 가정이 많고 수도물을 정수하는 가정용정수기의 보급이 보편화 되어 가고 있지만, 지금까지 정수과정에서 활성탄 이용에 관한 연구는 주로 수도물 생산 과정에 관한 연구가 많았다[4-6]. 생산된 수도물을 다시 정수하는 가정용 정수기에서도 거의 필수적으로 활성탄이 이용되고 있어 상수도관망에서 발생한 생물막 (biofilm) 유래의 세균들이, 입상활성탄 (Granular Activated Carbon, GAC) 상에서 성장할 수 있는데도 이에 대한 연구가 거의 없는 실정이었다. 이에 본 연구에서는 수도물을 다시 정수하는 과정에서 세균생장에 의한 유출수 수질의 저하를 파악함과 동시에 활성탄 상에서 생물막을 이루고 있는 세균들에 대한 분석을 하고자 하였다. 이를 위하여 정수용 활성탄을 이용한 semi-pilot plant system을 제작하고 통수를 시키면서, 유입수와 유출수의 종속영양세균수를 계수하였고

활성탄상의 세균수와 세균활성 및 세균군집구조를 조사하였다.

재료 및 방법

입상활성탄(Granular Activated Carbon, GAC)

야자(coconut shell)와 역청탄(bituminous coal)을 원료로 제작된 정수용 입상활성탄을 체(sieve)로 걸러, 2 mm 이상의 것을 제거한 후 DDW (deionized distilled water, Millipore)로 씻어 미세한 입자를 제거했다. 이 후 dry oven (110°C)에서 건조된 활성탄은 건조기에 보관을 하였고, 실험 전에 dry oven (110°C, 3시간)에서 건조시켰다.

입상활성탄 컬럼(GAC Column)

Polypropylene 컬럼(내경 5 cm, 길이 33 cm)에 탈이온수(DDW)를 붓고 GAC 350~360 g을 채워 활성탄 입자가 유동되지 않게 고정하였다. 컬럼의 유입부와 유출부는 내경 8 mm, 외경 11 mm의 실리콘 튜브(Masterflex 96400-18, Masterflex)로 연결하였다. 1시간 동안 멸균한 후 12시간 이상 실온에 두었다.

유입수는 배급수관 말단의 수도물을 이용하였다. 수도꼭지에 실리콘 튜브를 직접 연결하여 상향류(upflow) 방식으로 유량이 550 ml~600 ml/min 되도록(EBCT [empty bed contact time] = 0.92~1분) 1일 13시간씩 14일 동안 통수시켰다. 봄에는 역청탄 원료의 활성탄만을 이용하였고, 늦여름에는 야자 원료의 활성탄까지 함께 사용하였다. 봄 시료를 대상으로는 종속영양세균만 계수하였다.

종속영양세균 계수(Heterotrophic plate count, HPC)

실험 방법은 Standard Method [1]를 따랐고 분석을 위한 시료는 10% sodium thiosulfate로 탈염소(dechlorination)하

*Corresponding author

Tel : +82-51-999-5748, Fax : +82-51-999-5636

E-mail : jhalee@silla.ac.kr

였다. 종속영양세균 계수는 R₂A agar medium에 시료 1 ml 을 접종한 후 20°C에서 7일간 배양한 후에 균체수를 계수하였다.

칼럼 내부 입상활성탄의 세균 분석

칼럼 가동 후 칼럼 내부의 입상활성탄을 8 cm 간격으로 일정량 채취하였다. 멸균된 거즈 위에 시료를 놓고 멸균된 수돗물을 이용하여, 생물막을 형성하지 않고 가역적 흡착한 세균을 제거하였다. 멸균된 인산완충용액 50 ml이 들어 있는 시험관에 활성탄 1.0 g을 넣고 mild sonication (40 kHz) 1 분 · standing 1분 처리를 3회 반복한 것을 다시 vortexing 1 분 · standing 1분 처리를 3회 반복한 후 R₂A agar medium 을 이용하여 활성탄 상의 종속영양세균을 계수하였다.

세균군집구조 분석

R₂A agar 배지에서 성장한 균체를 이용하였다. 각 활성탄 필터 내부의 일정 정점별로 50개 이상의 균체를 무작위로 선별하여 단일 균주로 순수 분리하고 배양한 것을 동정에 사용하였다. 시료들로부터 분리된 세균들의 동정은 생화학적 동정시스템인 API kit (BioMerieux, France)를 이용하여 속명 (genus) 수준까지 동정하였다.

전자전달계 활성 측정

미생물 활성을 조사하기 위하여 전자전달계 활성을 측정하였다. 시료에 0.4% INT solution (2-(p-iodophenyl)-3-(p-nitrophenyl)-5-phenyl tetrazolium chloride) 1 ml을 가하였고 2시간 동안 어두운 곳에서 배양한 후, INT가 INT-formazan (iodonitrotetrazolium formazan)으로 환원된 것을 ethanol (Hayman limited) 5 ml로 추출하여 480 nm의 파장으로 분광광도계(Shimadzu, UV-160)를 이용하여 분석하였다. 시험군으로 활성탄 시료 0.5 g을, 대조군으로 1시간 멸균 처리된 활성탄 시료 0.5 g을 사용하였다.

결과 및 토의

유입수와 유출수의 종속영양세균 분석

유입수와 유출수의 종속영양세균수(Heterotrophic Plate Count, HPC) 양상은 Fig. 1과 같았다. 봄에는 수돗물을 4일 이상 통수시킨 후에 활성탄 칼럼 유출수가 유입수보다 높은 양상을 보였지만 전반적으로 비슷한 HPC를 보였다(Fig. 1A). 따라서 활성탄 칼럼에서 과파(breakthrough) 현상이 발생하지는 않았던 것으로 사료되었다. 하지만 여름에는 통수 시작일부터 6일까지는 칼럼 유입수가 유출수에 비해 높은 HPC를 나타내었다(Fig. 1B). 이 기간 동안 입상활성탄 칼럼 유입수 속의 HPC는 10³ CFU/ml 정도였고 야자계 활성탄 칼럼 유출수 속의 HPC는 10²~10³ CFU/ml, 석탄계 활성탄 칼럼

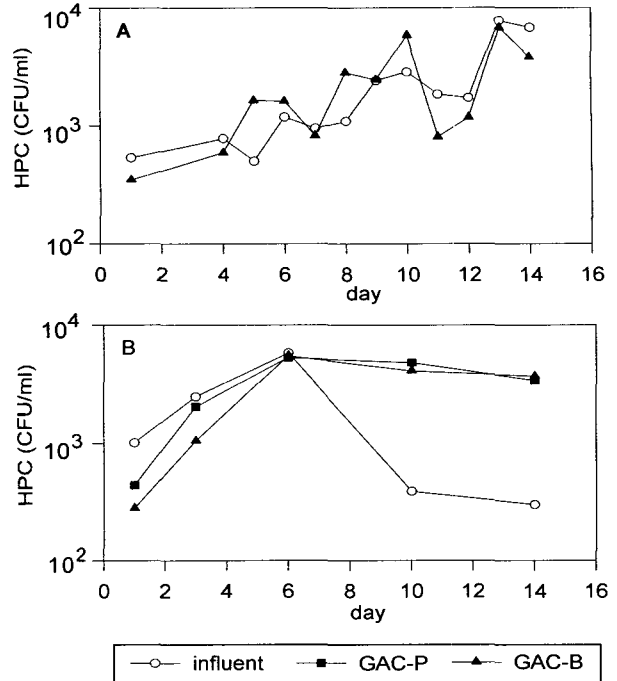


Fig. 1. Heterotrophic-plate-count (HPC) profile in influent and effluent of 2 kinds of GAC columns with passing tap water at spring (A) and late summer (B). GAC-P means plant based GAC and GAC-B represents bituminous coal based GAC.

유출수 속의 HPC는 야자계 활성탄보다 조금 낮지만 10²~10³ CFU/ml을 나타내었다. 6일 이후부터는 칼럼 유출수가 유입수인 수돗물보다 높은 수의 세균을 나타내어, 수돗물인 칼럼 유입수의 HPC가 10² CFU/ml 수준으로 낮아진 후에도 입상활성탄 칼럼 유출수는 10³ CFU/ml 수준의 높은 HPC를 유지하였다. 강물을 이용하는 경우에 10⁴~10⁵ CFU/ml 수준까지의 HPC를 관찰하였는데 이는 수돗물에 비해 강물이 상대적으로 영양분이 많은 이유 때문이라고 사료되었다[9,13].

수돗물을 이용한 실험에서 부유세균(planktonic bacteria)의 성장속도가 낮아 수계에서의 세균 급증은 생물막(biofilm) 탈착에 의한다는 보고[15]도 있지만 HPC가 유출수에서 6일 이후에 높은 값을 유지한 결과는 다음의 두 가지 유추가 가능하였다. 첫째 유입수 속의 세균들이 활성탄 칼럼에 축적되어 있다가 유출된 결과일 가능성이 있다. 둘째 활성탄 상에서 생물막을 형성하면서 성장한 세균들이 탈착(detach)되어 일어난 결과일 가능성이 있다.

두 가능성을 검증하기 위해 낮은 HPC를 갖는 유입수를 활성탄 칼럼에 통수시키면서 실험을 행하였다[8]. 수돗물을 다시 염소처리한 유입수를 이용하여 유입수 속의 HPC가 낮고 일정하게 하여 수돗물에서 야기되는 HPC가 높고 변동이 심한 것을 방지하여 실험한 결과 유출수에서 발견된 높은 세균수는 활성탄상의 세균 성장에 의한 것임을 밝혔다[8].

활성탄에서의 세균과파에는 온도가 중요한 것을 알 수 있

었다. 수온이 낮은 봄철에 14일까지 세균파괴가 일어나지 않았고(Fig. 1A) 여름에 10일 만에 세균 파괴가 발생한 것은 (Fig. 1B) 활성탄 상에서 생물막 형성에는 수온이 중요한 역할을 한다는 것을 의미한다. 이 등[8]의 결과와 비교하면 같은 수온에서 세균 재생장에는 유입수 속의 세균수보다 시간이 중요한 것을 알 수 있었다. 파괴가 일어난 시기까지 활성탄 칼럼에 유입된 총 HPC는, 수돗물을 다시 염소 처리한 유입수가 10⁹ CFU/ml 수준이었고 염소 재(再)처리를 하지 않은 유입수는 10⁶ CFU/ml 정도의 수준이었다. 하지만 R₂A 배지상에서는 모두 10일이 지난 후에 유출수가 유입수보다 높은 HPC를 보여 활성탄에서 세균 유출이 일어나는 것은 유입수 속의 세균수와는 큰 상관성이 없다는 것을 알 수 있었다[8]. 이러한 결과는 생물막 증식과 수계(水界)속의 세균수는 상관성이 없다는 보고와도 일치하였다[3].

칼럼 내부 입상활성탄의 미생물학적 분석

Fig. 2는 활성탄 칼럼 내부의 HPC와 세균활성을 관찰한 결과이다. 활성탄 상의 생물막을 형성하는 중속영양세균은 수계 유입부에서 유출부 방향으로 감소하는 양상을 보였으며 두 활성탄은 비슷하지만 석탄계 활성탄이 조금 높은 부착 세균을 갖고 있었다. 석탄계 활성탄이 10⁶~10⁵ CFU/g-GAC의 결과를 보였고, 야자계 활성탄도 비슷한 수치를 보였다. 세균량(bacterial biomass)이 15℃ 이상의 수온에서는 칼럼 깊이에 따라 수직 층화(vertical stratification)를 보인 것과 일치하였다[13].

Clostridium, *Staphylococcus*, *Shigella*, *Salmonella* 속 등의 병원성 세균과 대장균군 성장 유무를 파악하기 위해 선택 배지를 사용하였지만 추정양성 세균군락은 검출되지 않았다. 전자전달계 활성으로 파악한 미생물 활성은 야자계와 석탄계가 각각 16.97~24.71, 13.10~22.77 µg INT-formazan/g-GAC/h의 값을 유지하였다. 칼럼 깊이에 따른 미생물의 전자전달계 활성 변화 양상은 두 칼럼이 비슷하여 최고의 활성은 수돗물 유입지점에서, 최저의 활성은 칼럼 내부에서 유입부에 가까

Table 1. Identification results (%) of attached bacteria on GAC (granular activated carbon). GAC-P means plant (coconut) based GAC and GAC-C represents bituminous coal based GAC

Bacteria	% of identified bacteria	
	GAC-P	GAC-B
<i>Acinetobacter</i>	50.0	75.0
<i>Moraxella</i>	11.1	2.8
<i>Bordetella</i>	13.8	2.8
<i>Neisseria</i>	8.3	-
<i>Clavibacter</i>	2.8	2.8
<i>Pasturella</i>	-	5.6
<i>Pseudomonas</i>	8.3	-
<i>Corynebacterium</i>	-	2.8
<i>Listeria</i>	5.6	2.8
<i>Curtobacter</i>	-	5.6
Sum	100.0	100.0

운 지점에서 나타내는 것으로 드러났다. 방법론적으로는 INT 환원법을 활성탄에 이용한 보고 [10]도 있었지만 미생물 활성은 세균수 변화 양상과는 일치하지 않는 양상을 보였다.

활성탄에서 성장한 세균의 종류는 Table 1과 같았다. 야자계 활성탄은 *Acinetobacter*와 *Bordetella* 속이 각각 50.0%와 13.8%로 우점을 이루고 있는 것으로 판명되었다. 그리고 기타 *Pseudomonas*, *Listeria*, *Clavibacter* 그리고 *Neisseria* 속 등의 성장이 확인되었다. 석탄계 활성탄은 *Acinetobacter*가 75.0%로 확실한 우점을 하고 있었으며 기타 *Pasturella*, *Curtobacter*, *Bordetella*, *Clavibacter*, *Listeria* 그리고 *Corynebacterium* 속 등의 성장이 확인되었다. 석탄계와 식물계에 따라서 세균군집구조가 차이를 보였지만 모두 *Acinetobacter* 속(genus)이 우점을 하고 있었고, 이러한 결과는 정수장에서는 *Pseudomonas*가 우점을 하고 있지만 수도관을 따라 갈수록 *Acinetobacter* 속이 우점을 한다는 보고[11]와 일치하는 것이었다. 즉 배급수관 말단의 수돗물에는 *Acinetobacter* 속이 우점하고, 이러한 수돗물이 공급된 활성탄칼럼에서 *Acinetobacter* 속이 우점하는 것으로 나타나 두 결과가 일치하는 것으로 사료되었다.

가정용 수도꼭지에서 나오는 수돗물을 정수하는 활성탄을 이용한 본 실험에서 얻을 수 있는 결론은 다음과 같다. 첫째, 입상활성탄은 세균 성장의 좋은 기질을 제공하여 세균성장 현상이 활발하게 일어났고 둘째, 세균생장은 석탄계 활성탄에서 야자계 활성탄보다 잘 일어났으며 셋째, 활성탄 칼럼 내부에서 시료 채취 지점에 따라 세균수가 차이를 보였으며 활성은 큰 차이가 없었다. 마지막으로 원료에 따라 활성탄에서 성장하는 세균수가 달랐지만 *Acinetobacter* 속이 우점을 하고 있었다.

요 약

정수용 입상활성탄(Granular Activated Carbon, GAC)에

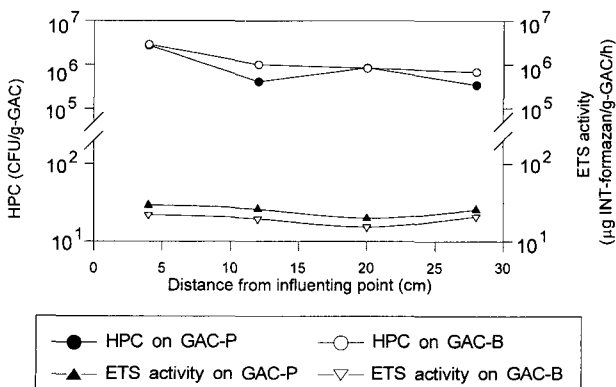


Fig. 2. Heterotrophic-plate-count (HPC) and electron-transport-system (ETS) activity of bacteria on GAC. See Fig. 1 for GAC-P and GAC-B.

서 발생하는 세균 성장 현상을 파악하기 위해 활성탄 칼럼을 제작하고, 수돗물을 고정식 상향류 방식으로 (EBCT = 0.92 ~ 1분) 통수시켰다. 봄에는 14일 동안 세균수의 파과(break-through) 현상이 없었다. 여름에는 야자계와 석탄계 활성탄 칼럼의 유출 세균수는 비슷하여 파과전에 10^2 CFU/ml 수준으로 유입수보다 낮았지만, 10일 이후 유출수가 10^3 CFU/ml로 유입수의 10^2 CFU/ml보다 높은 값을 보였다. 칼럼 내부 4지점의 활성탄을 깊이에 따라 분석했을 때 유입수 유입부에 가까울수록 많은 세균수가 관찰되었고 세균군집의 활성은 유사하였다. 성장하는 세균은 야자계와 석탄계 활성탄이 서로 달랐지만 *Acinetobacter* 속이 우점을 이루고 있는 것으로 나타났다.

참 고 문 헌

1. APHA. 1995. Standard methods for the examination of water and wastewater, 19th edition. Washington, DC.
2. Baudart, J., J. Coallier, P. Laurent and M. Prévost. 2002. Rapid and sensitive enumeration of viable diluted cells of members of the family *Enterobacteriaceae* in freshwater and drinking. *Applied and Environmental Microbiology* **68**, 5057-5063.
3. Flemming, H. C. 1993. Biofilm and environmental protection. *Water Science & Technology* **27**, 1-10.
4. Frimmel, F. F. 1998. Characterization of natural organic matter as major constituents in aquatic systems. *Journal of Contaminant Hydrology* **35**, 201-216.
5. Gagnon, G. A. and P. M. Huck. 2001. Removal of easily biodegradable organic compounds by drinking water biofilms: Analysis of kinetics and mass transfer. *Water Research* **35**, 2554-2564.
6. Guzzella, L., D. Feretti and S. Monarca. 2002. Advanced oxidation and adsorption technologies for organic micro-pollutant removal from lake water used as drinking-water supply. *Water Research* **36**, 4307-4318.
7. Lee, D. -G. and S. -J. Kim. 2003. Bacterial species in biofilm cultivated from the end of the Seoul water distribution system. *Journal of Applied Microbiology* **95**, 317-324.
8. Lee, D. -G., S.-J. Park, S.-J. Kim and J.-H. Lee. Comparison of bacterial regrowth on plant- and coal-based granular activated carbon. *Korean Journal of Biotechnology and Bioengineering* (in progress).
9. Liessens, J., R. Germonpre, I. Kersters, S. Beernaert and W. Verstraete. 1993. Removing nitrate with a metylophic fluidized bed echnology and operating performance. *Journal of AWWA*. **85**, 144-154.
10. Malley Jr, J. P., T. T. Eighmy, M. R. Collins, J. A. Royce and D. F. Morgan. 1993. The performance and microbiology of ozone-enhanced biological filtration. *Journal of AWWA*. **85**, 47-57.
11. Park, S. J., J. C. Cho and S. J. Kim. 1993. Distribution and change of bacteria in a drinking water distribution system. *The Journal of Microbiology* **31**, 245-254.
12. Reid, D. C., A. C. Edwards, D. Cooper, E. Wilson and B. A. McGaw. 2003. The quality of drinking water from private water supplies in Aberdeenshire, UK, *Water Research* **37**, 245-254.
13. Servais, P., P. Laurent and G. Randon. 1992. Measurement of bacterial biomass and activity in tap-water. *Revue Des Science De L'eau* **5**, 473-488.
14. Thurston-Enriquez, J. A., C. N. Haas, J. Jacangelo and C. P. Gerba. 2003. Chlorine inactivation of Adenovirus type 40 and feline Calicivirus. *Applied and Environmental Microbiology* **69**, 3979-3985.
15. Wende, E. V. D., W. G. Charaklis and D. B. Smith. 1989. Biofilms and bacterial drinking water quality. *Water Research* **23**, 1313-1322.